

## THIN FILM EL ELEMENT

Publication number: JP5182766

Publication date: 1993-07-23

**Inventor:** FUJIKAWA HISAYOSHI; TAGA YASUNORI

**Applicant:** TOYOTA CENTRAL RES & DEV

**Classification:**

- International: **G09F9/30; C09K11/77; H05B33/12; H05B33/14; H05B33/22; G09F9/30; C09K11/77; H05B33/12; H05B33/14; H05B33/22; (IPC1-7): G09F9/30; H05B33/22**

- european: C09K11/77B2; C09K11/77P2B; H05B33/14; H05B33/22

Application number: JP19910344758 19911226

Priority number(s): JP19910344758 19911226

**Also published as:**

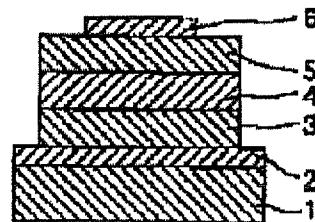


US5404075 (A1)

### Report a data error here

## Abstract of JP5182766

**PURPOSE:** To obtain high brightness by using a Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> to which Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> or WO<sub>3</sub> is added as an insulating layer. **CONSTITUTION:** On a glass substrate 1, an ITO (indium tin oxide) thin film of a transparent electrode 2, an insulating layer 3, a luminous layer 4, and an insulating layer 5 are laminated, and an aluminum electrode 6 is provided on the uppermost surface. The layers 3 and 5 are formed of a Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin film including Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> or WO<sub>3</sub> while the layer 4 is formed of a ZnS to which Tb to present a green luminescence or Pr to present a white luminescence is doped. The electrode 2 of 2000Angstrom is formed on the substrate 1, the layer 3 is formed by a sputtering, while the ZnS to which the Tb to present a green luminescence or the Pr to present a white luminescence is doped is formed at 0.5μm at 200 deg.C in an argon gas to form the layer 4, the layer 5 is formed in the same manner as the layer 3, and the Al electrode 6 is vacuum evaporated at 0.3μm, so as to form the EL element. Consequently, it can be driven at a low voltage, and a high brightness can be obtained. Furthermore, the durability of the display is improved, and a stability can be obtained.



Data supplied from the [esp@cenet](mailto:esp@cenet) database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-182766

(43)公開日 平成5年(1993)7月23日

(51)Int.Cl.<sup>5</sup>

H 05 B 33/22

G 09 F 9/30

識別記号 庁内整理番号

3 6 5 D 6447-5G

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数1(全11頁)

(21)出願番号

特願平3-344758

(22)出願日

平成3年(1991)12月26日

(71)出願人 000003609

株式会社豊田中央研究所

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1

(72)発明者 藤川 久喜

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72)発明者 多賀 康訓

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

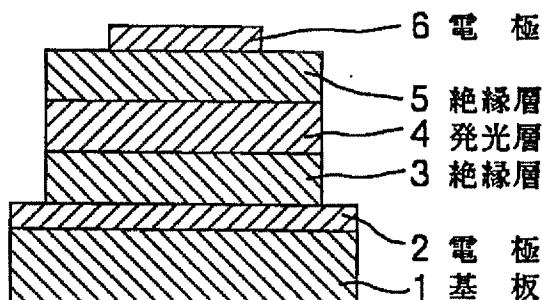
(74)代理人 弁理士 大川 宏

(54)【発明の名称】 薄膜E L素子

(57)【要約】

【目的】 高誘電体の薄膜を絶縁層として使用することに、高い絶縁性を示し表示の耐久性の向上と安定性を有する薄膜E L素子とすること。

【構成】 相対向する一対の電極と、該電極間に設けられた一対の絶縁層と、該絶縁層に挟まれた発光層とから構成される薄膜E L素子において、該絶縁層の少なくとも一方は、酸化イットリウム ( $Y_2O_3$ ) または酸化タンタル ( $Ta_2O_5$ ) で構成されていることを特徴とする薄膜E L素子。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 相対向する一対の電極と、該電極間に設けられた一対の絶縁層と、該絶縁層に挟まれた発光層とから構成される薄膜E L素子において、該絶縁層の少なくとも一方は、酸化イットリウム ( $Y_2O_3$ ) または酸化タンゲステン ( $WO_3$ ) を含む酸化タンタル ( $Ta_2O_5$ ) により構成されていることを特徴とする薄膜E L素子。

## 【発明の詳細な説明】

### 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、ディスプレイ等に使用される薄膜E L素子に関する。

### 【0002】

【従来の技術】 人と機械のインターフェイスとしてディスプレイが必要不可欠である。ディスプレイ、たとえば、事務用や計算用のOA機器のディスプレイには、高分解能で視認性が良いことや、フルカラー表示が容易であることからCRTが広く利用されている。しかしCRTは装置の奥行きを広くとる必要があり場所を取るといった欠点がある。また、最近ラップトップ型のパソコンなどの需要増のため、表示素子の薄型化、軽量化が進められており、フルカラーの液晶ディスプレイも利用されている。しかし、液晶の場合、液晶自体が非発光であるためバックライトを必要とすること、液晶の偏光を利用しているため視野が狭くなること、レスポンスが遅いといった欠点がある。

【0003】 その他のディスプレイとして、プラズマディスプレイ、蛍光表示管、発光ダイオードをアレイ状に並べた表示素子が表示装置として利用されているが、光の三原色である赤、緑、青の全ての発光を得るのが困難でありフルカラー化できないことや、分解能の観点から表示ドットを小さくすることができないといった欠点がある。

【0004】 このような中で全固体の薄膜でかつ自発光素子のE L(E lectro Luminescence)素子が注目され、一部ではフラットパネルディスプレイとして実用化されている。この薄膜E L素子は、全固体型で発光層を絶縁層により挟持した構造をとっている。また、透明電極を用いることにより、安価なガラス基板上に形成でき、容易に大面積の面発光が形成できる。さらに発光層の上下の電極をも透明電極とすることにより透過型の素子とすることも可能である。さらに、フォトリソグラフィーを用いることで、非常に小さい素子が形成でき分解能を向上させることができる。特に自動車のインジケーターとして、一対の透明電極を用いた透過型素子では、非発光時には前面の視界が認識でき、発光時には視界と表示内容とが同時に確認できるいわゆるヘッドアップディスプレーを構成できるという特徴を有するため、その開発が進められている。また、このE L素子の駆動のためには、約100～200Vの交流電

圧を印加することが必要であるが、発光層を絶縁層によりサンドイッチ状に挟み電流の流れ方向を制限しているため、実際に消費される電力は非常に小さい。

【0005】 このように薄膜のE L素子は、自動車用のディスプレー装置としても従来の素子より自発光のため視認性に優れる。一方、この薄膜E L素子の現状の問題点としては、素子の動作原理上、非常に高い交流の電界が印加されることとなる。素子の構成上絶縁層で発光層をサンドイッチ状に挟み電流の流れを絶縁層により制限している。このため素子の寿命を制限する要因として、絶縁層の絶縁破壊が挙げられる。また、自動車などに搭載する場合は、一般的オフィスとは異なり過酷な高温、高湿の環境で使用されることになる。このような環境では、絶縁層の急速な劣化が問題になる。

【0006】 さらに大面積の素子を考えた場合、一つのドットの破壊であってもその機能を果たさなくなる。このため大面積に均一で高絶縁性を有する絶縁層を形成する技術が非常に重要である。また素子の生産工程での歩留りを向上させるためにも、絶縁層の成膜技術は、寿命、信頼性、歩留りの観点からキーポイントとなっている。

### 【0007】

【発明が解決しようとする課題】 薄膜E L素子は一般に、希土類元素を添加したZnS、CaS、SrSなどのII～IV元素の化合物半導体を母材とした発光層と該発光層をサンドイッチ状に挟んだ絶縁層で、その両側面に設けた透明電極あるいは金属電極と、より構成されている。そしてこの電極間に交流電圧を印加することにより、発光層中の発光中心を励起し、E L発光させていく。発光層には、1～2MV/cm程度の高電界が印加されており、この動作を安定におこなうためには絶縁層で電流の流れ方向を制限する必要がある。したがって、絶縁層の均一性、安定性は、E L素子の動作の安定性、高機能化に対して最も重要である。また、交流動作のため、絶縁層はコンデンサ膜と同一の働きをしており、E L素子の駆動電圧を下げるためには、高誘電率の絶縁体層を利用する必要がある。さらに、発光輝度は、発光層中を流れる電流と比例関係にあり、この電流は、絶縁層と発光層間の界面に蓄積される電荷量により決まる。この電荷量は、絶縁層の最大蓄積電荷量、つまり、絶縁破壊電界強度と比誘電率との積即ち性能指数により決まる。したがって、最大蓄積電荷量の大きい材料を用いることが、高輝度化のために重要である。また、このE L素子には、発光層と絶縁層、あるいは、絶縁層と電極といった界面での密着性、絶縁破壊のモードが伝搬型でなく、自己修復型であることが必要である。これは、絶縁破壊が生じた場合に表示素子全体に、破壊が伝播しなければ、正常動作している部分での作動が可能である。

【0008】 本発明は上記の事情に鑑みてなされたもので、高誘電率の薄膜を絶縁層として使用することによ

り、高い絶縁性を示し表示の耐久性の向上と安定を有する薄膜EL素子とすることを目的とする。

#### 【0009】

【課題を解決するための手段】本発明の薄膜EL素子は、相対向する一対の電極と、該電極間に設けられた一対の絶縁層と、該絶縁層に挟まれた発光層とから構成される薄膜EL素子において、該絶縁層の少なくとも一方は、酸化イットリウム ( $Y_2O_3$ ) または酸化タンゲステン ( $WO_3$ ) を含む酸化タンタル ( $Ta_2O_5$ ) により構成されていることを特徴とする。

【0010】この薄膜EL素子は、周期率表で I I ~ I V 属の元素の化合物に発光中心として希土類元素を添加して形成される発光層と、発光層の両側面に上記の酸化物を含む  $Ta_2O_5$  膜の絶縁層で挟持した絶縁層と絶縁層の両側面に密着された一対の電極とから構成されている。この絶縁層を構成する  $Ta_2O_5$  膜は高誘電率であるが以下の酸化物が添加されるとさらに絶縁性が向上する。添加される酸化物は、 $Y_2O_3$  または、 $WO_3$  であり、その濃度には望ましい範囲が存在し、それは、 $Y_2O_3$  の場合が 8~30 at. % であり、 $WO_3$  の場合が 2~4 at. % である。

【0011】 $Ta_2O_5$  膜に  $Y_2O_3$  が添加されると、広い濃度範囲で絶縁耐圧の向上がみられるが、添加量が多くなると比誘電率が低下するので絶縁層の性能指数の観点から、最適の濃度範囲は 8~30 at. % とするのが好ましい。また、 $WO_3$  を添加する場合は、 $WO_3$  の濃度が 4 at. % を超えると急激に絶縁耐圧が低下するので性能指数の観点から 2~4 at. % の範囲が最適濃度範囲である。

【0012】また発光層の最適な発光効率を有する膜厚が 0.5~1  $\mu m$  であるので、この発光層に十分な電界を印加し、発光層と絶縁層界面に電界発光させるに十分な電荷を蓄積し、さらに、低電圧駆動をおこなう目的で、両側の絶縁層の膜厚は、0.2~2.0  $\mu m$  程度とするのが望ましい。これより薄い場合には、発光のしきい値電圧は低下するが、安定な発光輝度が得られる電圧範囲が限定され、また、絶縁層のピンホールやクラックなどの発生のため、絶縁層の成膜歩留りが低下するので好ましくない。また、絶縁層の膜厚が 2.0  $\mu m$  を超えて厚くなると、しきい値電圧が上がり、また、発光層と絶縁層界面に蓄積される電荷量が減少するため輝度の低下がおこり望ましくない。

【0013】絶縁層の形成は、基板温度が 200 から 300 °C の低温の範囲で形成することで十分な最大蓄積電荷をもつ絶縁層とすることが可能である。そのため、発光層や電極形成の基板温度と同等か、それ以下の温度で成膜できるため、EL素子作製のプロセスに容易に適応できる。また、積層の絶縁層を用いるのでなく、複合化した絶縁層を用いるので、電子線蒸着、スパッタ蒸着の際に、混合した蒸発源、スパッタターゲットを用いるこ

とができるので、製作工程の簡略化が可能となる。

【0014】上記の絶縁層は、従来の絶縁層と同様の手段により EL 素子の製造に使用できる。

#### 【0015】

【作用】本発明の薄膜EL素子では、絶縁層に  $Y_2O_3$  または  $WO_3$  を含む  $Ta_2O_5$  膜を使用しており、従来の  $Ta_2O_5$  膜を単独に使用した場合に比べ絶縁層の比誘電率は約 20 程度である。そのため、従来絶縁層に用いられている  $Y_2O_3$ 、 $Si_3N_4$ 、 $SiO_2$  等の比較的、比誘電率の低い材料を用いた場合に比べて交流動作の EL 素子の発光しきい値電圧を低下させることができる。

【0016】また、この絶縁層は、 $Y_2O_3$  または  $WO_3$  添加による比誘電率の低下が小さいため  $Ta_2O_5$  膜単独の膜と比べても、殆どしきい値電圧は変化しない。さらに、絶縁破壊電界強度が約 4 MV/cm と高いことから、発光のしきい値電圧から、絶縁破壊に至る電圧までの電圧範囲を大きくとれ、従来の  $Ta_2O_5$  膜を単独に使用した場合に比べて、安定な動作が可能である。

【0017】さらに、その最大輝度を決定する要因のひとつである最大蓄積電荷量が大きくなるため、従来の絶縁層を用いた場合より高輝度の EL 素子が作製できる。この薄膜EL素子は、高電界を印加することにより発光中心を励起し、発光を得ているが、高電界印加のため、長期的な安定性の寿命が問題となる。この寿命は絶縁層の時間に依存した絶縁破壊と密接に関係しており、絶縁層の経時的な絶縁破壊までの寿命が長いほど、EL 素子自体の寿命も長い。本発明の酸化物を添加した  $Ta_2O_5$  膜では、 $Ta_2O_5$  単独膜より経時的な絶縁破壊までの時間が長く、十分な EL 素子の長寿命化が達成できる。

#### 【0018】

【実施例】以下実施例により具体的に説明する。図 1 にこの薄膜EL素子の断面模式図を示す。この薄膜EL素子は、ガラス基板 1 と、ガラス基板 1 上に形成された透明電極 2 のITO膜と、透明電極 2 上に絶縁層 3 と発光層 4 と絶縁層 5 とが積層され最上面にアルミニウム電極 6 が設けられた構成となっている。

【0019】絶縁層 3、5 は、 $Y_2O_3$  または  $WO_3$  を含む  $Ta_2O_5$  膜で形成され、発光層 4 は緑色発光を示す  $Tb$ 、または白色発光する  $Pr$  をドープした  $ZnS$  (硫化亜鉛) で形成されている。

(試験例) まず本発明の絶縁層の比誘電率、絶縁破壊電界強度、性能指数などの電気的特性を調べた。

【0020】 $Y_2O_3$  の含有量が 0 at. %、8.2 at. %、13.7 at. %、19.9 at. %、32.0 at. %、100 at. % とある 6 種類の  $Ta_2O_5$  膜を  $Si$  基板上に成膜し電極として A1 を真空蒸着した。成膜はスパッタ装置を用いて行い、その条件としては  $Y_2O_3$  と  $Ta_2O_5$  のそれぞれの酸化物焼結体ターゲットを用い、30 % の

酸素を含むアルゴンガス中で基板温度300°Cとし、200Åの膜厚を形成した。なお、得られた絶縁層中のY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の含有量はRutherford Back Scattering法で定量分析した。

【0021】図2にY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を含むTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜のY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>濃度と絶縁破壊電界強度E<sub>bd</sub>との関係を示す。Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>が100%の場合は絶縁破壊強電界強度が1.5~1.9(MV/cm)であるが、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の添加量が8~30at.%の範囲のTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜では、絶縁破壊電界強度がTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜単独の場合の1.9より大きく(図2の破線より上方にあり)約2倍MV/cmの絶縁破壊電界強度を示した。

【0022】図4にY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を含むTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜のY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>濃度と比誘電率ε<sub>r</sub>との関係を示す。比誘電率はY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>添加量の増加に対して低下する傾向にあるものの1.6程度の値を有する。また図6にY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を含むTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜のY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>濃度と性能指数(比誘電率×電界強度)の関係を示す。これはY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の添加量の増加と共に性能指数は大きくなっている。したがって、図4と図6の結果を併せて考えればY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の濃度は、8~30at.%の範囲が好ましい。

【0023】次にY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の代わりにWO<sub>3</sub>(2.3a

t.%、3.6at.%、15.8at.%、25.1at.%の添加量)を含むTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜をSi基板上に同様な条件で成膜し電極としてA1を真空蒸着した構造で比誘電率、絶縁破壊電界強度、性能指数を測定した。結果を図3、図5、図7に示す。図3に示すようにTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>中のWO<sub>3</sub>の添加量が2~4at.%の範囲で絶縁破壊電界強度がTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜単独の場合と比べて約2倍以上に向上した。しかし添加量が4at.%を超えると急激に絶縁破壊強度が低下し25.1at.%の場合はTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>単独よりも低下した。

【0024】図5に示す比誘電率はY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の場合と異なりTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜単独の場合と比べて高くなっている。図7の性能指数も添加量が2~4at.%の範囲では約2倍と高い値を示した。したがって、図3、図5、図7の結果よりWO<sub>3</sub>の添加量は2~4at.%の範囲が好ましい。最大蓄積電荷量は表1に示すようにY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(19.9at.%)、WO<sub>3</sub>(3.6at.%)を含むTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜は、他の絶縁材料と比較してもEL素子の機能を決める最大蓄積電荷量が非常に高くEL素子の高性能化に対して非常に効果的である。

【0025】

【表1】

材料	比誘電率	絶縁耐圧	最大蓄積電荷量
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	21	4	8.4
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + WO <sub>3</sub>	21	4	8.4
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	23	2	4.6
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	12	1	1.2
SiO <sub>2</sub>	4	8	3.2

注: 膜厚800Å

(実施例) 上記のY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を(19.9at.%)含むTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜を用いてEL素子を作製した。ガラス基板1上に膜厚2000ÅのITOの透明電極2を形成し、絶縁層3をスパッタ成膜した。この場合Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の酸化物焼結体ターゲットを用い、2元同時スパッタによりY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の比率が原子数比で約20%になるように、ターゲットに投入する電力を制御し成膜をおこなった。また、酸化物絶縁体の成膜の際に、酸素が十分膜に取り込まれないので、これを補うために酸素をアルゴンガス中に30%添加したスパッタガスで、基板温度を200°Cにしておこなった。膜厚は0.3μmである。

【0026】この絶縁層3の形成後、発光層4として緑色発光を示すTb、または、白色発光するPrをドープしたZnSを約0.5μmの膜厚にアルゴンガス中で基板温度200°Cで成膜した。そして絶縁層3と同様にして発光層4の上面に絶縁層5を成膜し、上部電極6とし

てA1電極を約0.3μmの膜厚に真空蒸着してEL素子を形成した。

【0027】比較として、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を含まないTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>のみの絶縁層3'、5'を用いた他は同様にしてEL素子を作製した。EL素子は、発光層4に周期律のII~IV属元素の半導体を用いているが、バンドギャップの広い透明な薄膜であるため、発光に必要な電界以下の発光のしきい値電圧以下では、コンデンサが直列につながった等価回路と考えられる。また、発光層4に発光層4と絶縁層3、5との界面準位から放出される電子が、発光中心を十分励起するだけの電界(1~2MV/cm)が印加されたときに、薄膜EL電子は発光する。このとき、発光層4には電流が流れ、コンデンサ膜と抵抗が並列になった等価回路で表され、発光層4に印加される電界は、クランプされる。このとき絶縁層3、5は、発光層4中を交流励起している電流が安定に流れるように、電流の流れ方向を制限して素子を安定化している。

【0028】ここで、発光のしきい値電圧以下では、発光層4への印加電界は、発光層4の静電容量をC<sub>2</sub>、絶縁層3、5の静電容量をC<sub>1</sub>、素子全体に印加される電圧をV<sub>tot</sub> とすると、発光層4に印加される電圧V<sub>i</sub> は、 $V_i = (V_{tot}) / (1 + C_2 / C_1)$  のように表される。したがって、効率よく発光層に電圧を印加し、絶縁層3、5へ無駄な電圧を印加しないようするためには、静電容量の大きい、つまり、比誘電率の大きい材料を用いる必要がある。

【0029】また、発光のしきい値電圧以上の電圧が印加された場合、発光層4に印加される電圧は、一定値でクランプされているため、残りの電圧はすべて絶縁層に印加されるようになる。したがって、EL素子の破壊は、絶縁層3、5の絶縁破壊によりおこる。したがって、絶縁破壊強度の大きい材料を用いる必要がある。さらに、EL素子の発光輝度は、発光効率と発光中心の数と励起に必要な電子数の積で表される。発光層4の特性が同じ場合、発光効率と発光中心の数は同じであるので、励起に必要な電子の数によって決定される。ここで電子数は、EL素子がコンデンサ膜の直列回路で表されるため、絶縁層3、5に蓄えられる蓄積電荷量と等価になる。したがって、高輝度のEL発光をえるためには、最大蓄積電荷量の大きい材料を用いる必要がある。

【0030】表1に示すように、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> またはWO<sub>3</sub> を添加したTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 膜は、他の絶縁材料と比べても非常に優れた特性を示すことが分かる。ここで、実際の素子の輝度-印加電圧特性を図8に示す。図8に示すようにY<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を添加したTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub> を絶縁層3、5として用いた実施例の素子は、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を含まないTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub> を絶縁層3'、5'とした比較例の素子に比べてしきい値が殆ど変化せず、また他の絶縁層SiO<sub>2</sub>、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用いた場合よりも低かった（図示せず）。また、実施例の素子では、素子が破壊する電圧が、比較例の素子より高く最大の輝度も高い。したがって、実施例の素子は広い印加電圧の範囲で安定したELの発光を得ることができる。また、絶縁層の材料に比誘電率が大きく、絶縁破壊電界強度の大きい。したがって、本実施例では最大蓄積電荷量の大きい材料を用いたため、高輝度で、しきい値電圧が低く、駆動電圧範囲の広いEL素子が構成できる。

【0031】また、EL素子の発光層は、大気中の水分を吸湿しやすい材料で構成されるので、素子の破壊が発光層と絶縁層の界面での剥離によりおこる場合が多い。このことから、絶縁層と発光層の密着性がEL素子の寿命、安定性を左右すると考えられる。また、ひとつのドットの破壊が、他の素子の破壊につながらなければ、素子全体の信頼性、寿命を増すことが可能である。

【0032】この発光層4と絶縁層3、5の密着性は、成膜方法や成膜条件によっても変化するが、発光層4と絶縁層3、5との原子の化学的な結合による部分に依存

すると考えられる。したがって、絶縁材料として、密着性のよい絶縁材料を用いる必要がある。表2に、発光層と絶縁材料の密着性を評価した結果を示す。この評価は、スコッチテープを用いたテープ剥離試験いわゆるピーリングテストによりおこなった。Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 膜の場合には、テープにより容易に絶縁層と発光層との間で剥離が発生した。しかし、もともと密着性が良く、電子親和力の強いY<sub>2</sub>O<sub>3</sub> をTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub> に添加することで、この実施例の絶縁層3、5では、発光層4の界面の結合状態がイットリウム原子により改善され、密着性が向上したと考えられる。

【0033】

【表2】

材料	密着性
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	良
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	不良
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	良

また表3に、素子の破壊モードを示す。素子が破壊する場合の破壊モードは、従来の比較例の絶縁層では伝搬型の特性を示すが、実施例の絶縁層においては、基本的には、自己回復型になっている。破壊モードは、電極と絶縁層の界面または、発光層と絶縁層の界面状態により決定されている。この破壊モードは、絶縁材料に依存することが従来より報告されている。そのメカニズムについては、明らかでないが大旨次のように考えられている。即ち素子の破壊は、絶縁層のミクロ的な構造欠陥や膜中の酸素や金属の空格子が電子のトラップになりそれがトリガーとなり、電流経路が形成され、絶縁破壊が生じる。このとき、該電流によりジュール熱が発生し、絶縁体や電極が局部的に蒸発したり、放電し、機械的な破壊が生じる。したがって、絶縁材料の蒸気圧や、発熱による熱膨張率の違いにより、破壊のモードが決まると考えられる。

【0034】

【表3】

材料	破壊モード
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	自己回復型
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	伝搬型
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	自己回復型
SiO <sub>2</sub>	自己回復型

本発明の薄膜EL素子は、従来、伝搬型であったTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 膜の特性をY<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を添加することにより、電気的な特性だけでなく、熱的な性質や機械的な性質も改善できたため、これにより破壊モードが自己回復型になった

と考えられる。

【0035】また、EL素子の作製上の問題として、素子を成膜中あるいは、発光効率を向上させるためにEL素子作製後の熱処理により、透明電極であるITO膜の抵抗値が増加するといった問題があった。ITO電極の抵抗値が大きくなると、大型の素子にした場合、発光むらができたり、発熱により破壊が加速されるといった問題がある。このITO膜の高抵抗化は、ITO膜と接している酸化物絶縁層が不安定な場合に、ITO中のInの拡散や、ITO膜の酸化・還元反応により、抵抗値が変化すると考えられる。

【0036】図9はEL素子の形成過程でのITO電極の抵抗値の変化を示したものであるが、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>にY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を添加することにより安定な複合酸化物となっているので、ITOと熱処理によっても反応しないと考えられる。成膜工程の観点からも従来技術の場合には、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜のように伝搬型の絶縁層を使用する場合には、自己修復型の特性を示すY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>やSiO<sub>2</sub>などの絶縁層を電極との界面に形成する必要があり、工程が複雑化していた。しかし、複合酸化膜の場合には成膜工程が少なくてよい。

【0037】本発明のEL素子では密着性の改善、自己回復型の破壊モードを示し、またITO電極が高抵抗化しないことから、実際にEL素子を長時間連続作動させた場合に、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を添加したTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜を絶縁層に利用することにより、安定な動作が得られる。図10に、エポキシ樹脂により、簡便な封止をおこない、大気中で長時間の駆動をおこなった場合のEL素子の発光輝度の経時変化を示す。発光中心として、Prを用いた場合のEL素子について確認した。この図に示すように本発明による薄膜EL素子では2000時間以上の安定な動作が確認されており、信頼性に優れている。これは発光層に安定した電界を印加させために、発光層を挟持している絶縁層の安定性が向上したためであるまた、図8に示した輝度-電圧特性といった素子の初期特性は、絶縁層の最大蓄積電荷量で定まる。この初期特性に対して、この結果は、絶縁層と発光層の密着性、電極と発光層の密着性、自己修復型の破壊モード、ITOの電極の抵抗値が変化しないことなど長寿命化にとって、重要な要素を兼ね備えた絶縁層を用いてEL素子を構成したので、長寿命化安定化が図られていると考えられる。一方、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を絶縁層とした比較例の素子では、図10に示すように1000時間程度で破壊する。この原因については、従来から用いられているTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>単独膜の絶縁体では、初期特性は問題が発生しないが、密着性が悪い、伝搬型の破壊モードを示すことなど、信頼性、安定性に欠ける要素があるため、寿命が短いものと考えられる。

### 【0038】

【発明の効果】薄膜EL素子の絶縁層にY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>またはWO<sub>3</sub>を添加したTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜を使用することにより、EL素子の作動に必要な低電圧駆動化、高輝度化が達成できる。これは交流駆動のEL素子に対して、比誘電率、絶縁破壊電界強度、最大蓄積電荷量といった要因で比較した場合、従来から利用されている、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>、SiO<sub>2</sub>などよりY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>またはWO<sub>3</sub>を添加したTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>膜の特性が優れることによる。

【0039】また、素子の寿命、安定性に係わる経時的な絶縁破壊時間が長く、また、発光層との密着性に優れEL素子の破壊モードも自己修復型であり、表示素子の長寿命化、安定化に優れた効果がある。また、この絶縁層は基板温度が200～300℃と低温で形成できるので、発光層の材料に依存せず適用でき、複合膜のため成膜工程が複雑にならないといった工程上の効果がある。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】この図はEL素子の構成を示す断面模式図である。

【図2】この図は本実施例で使用する絶縁層の添加物の添加組成と絶縁破壊電界強度との関係を示すグラフで、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を添加した場合である。

【図3】この図は本実施例で使用する絶縁層の添加物の添加組成と絶縁破壊電界強度との関係を示すグラフで、WO<sub>3</sub>を添加した場合である。

【図4】この図は本実施例で使用する絶縁層の添加物の添加組成と比誘電率との関係を示すグラフで、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を添加した場合である。

【図5】この図は本実施例で使用する絶縁層の添加物の添加組成と比誘電率との関係を示すグラフで、WO<sub>3</sub>を添加した場合である。

【図6】この図は本実施例で使用する絶縁層の添加物の添加組成と性能指標との関係を示すグラフで、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を添加した場合である。

【図7】この図は本実施例で使用する絶縁層の添加物の添加組成と性能指標との関係を示すグラフで、WO<sub>3</sub>を添加した場合である。

【図8】この図は素子の発光輝度と駆動電圧との関係を示すグラフである。

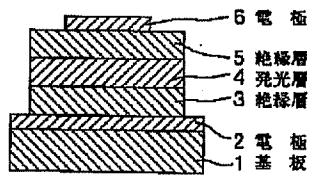
【図9】この図は素子の基板に形成されるITO膜の熱処理による抵抗値の変化を示すグラフである。

【図10】この図は素子の作動による輝度の経時変化を示すグラフである。

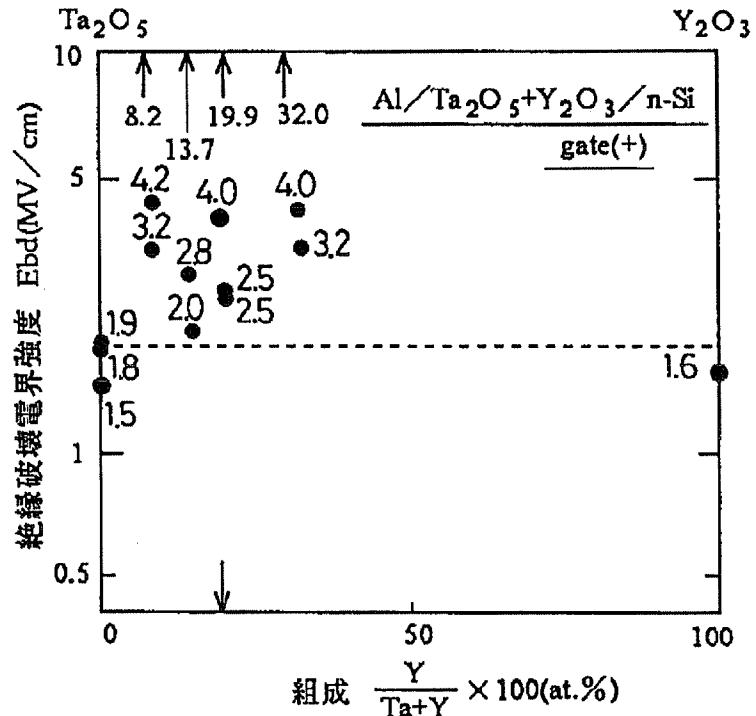
#### 【符号の説明】

- 1 ガラス基板、 2 ITO電極、 3、 5 絶縁層、
- 4 発光層、 6 Al電極

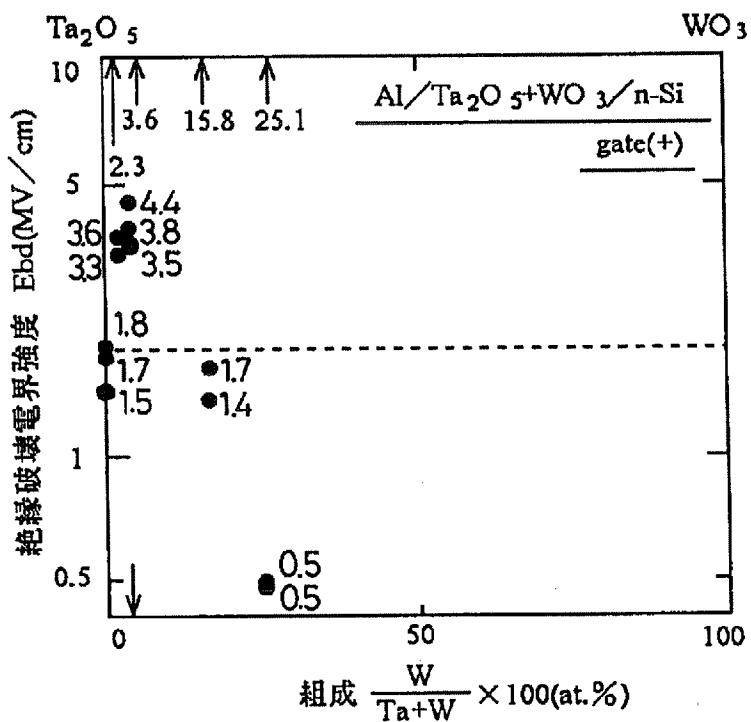
【図1】



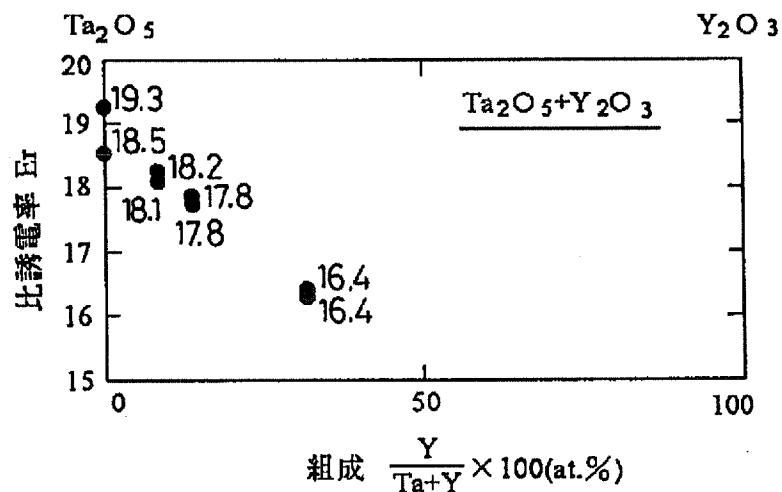
【図2】



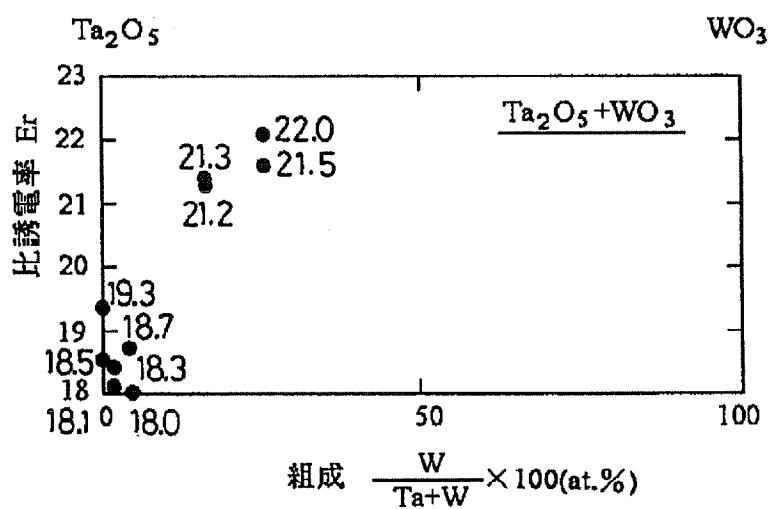
【図3】



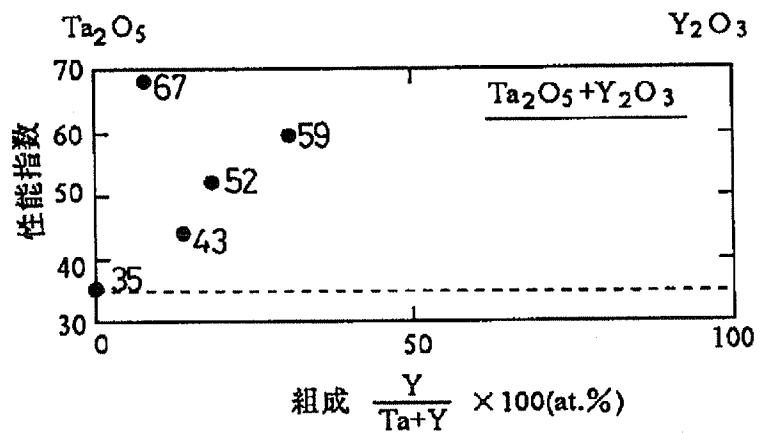
【図4】



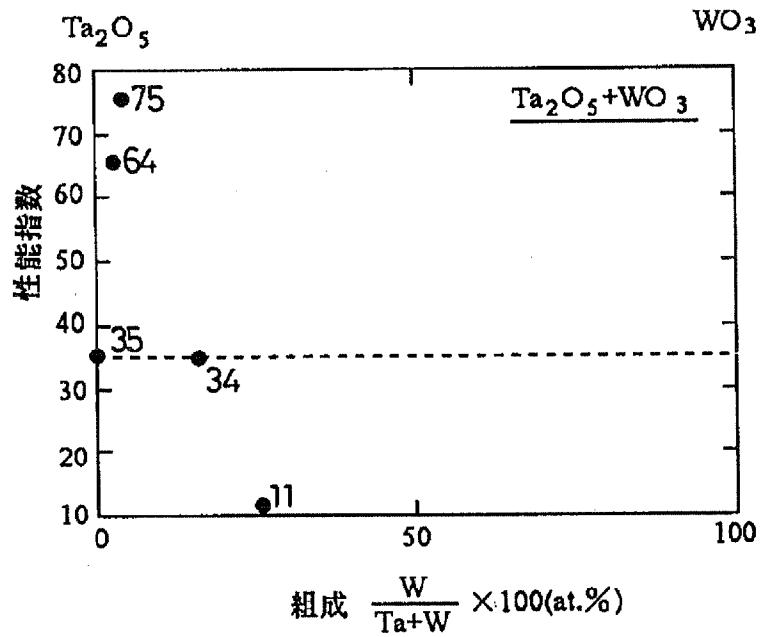
【図5】



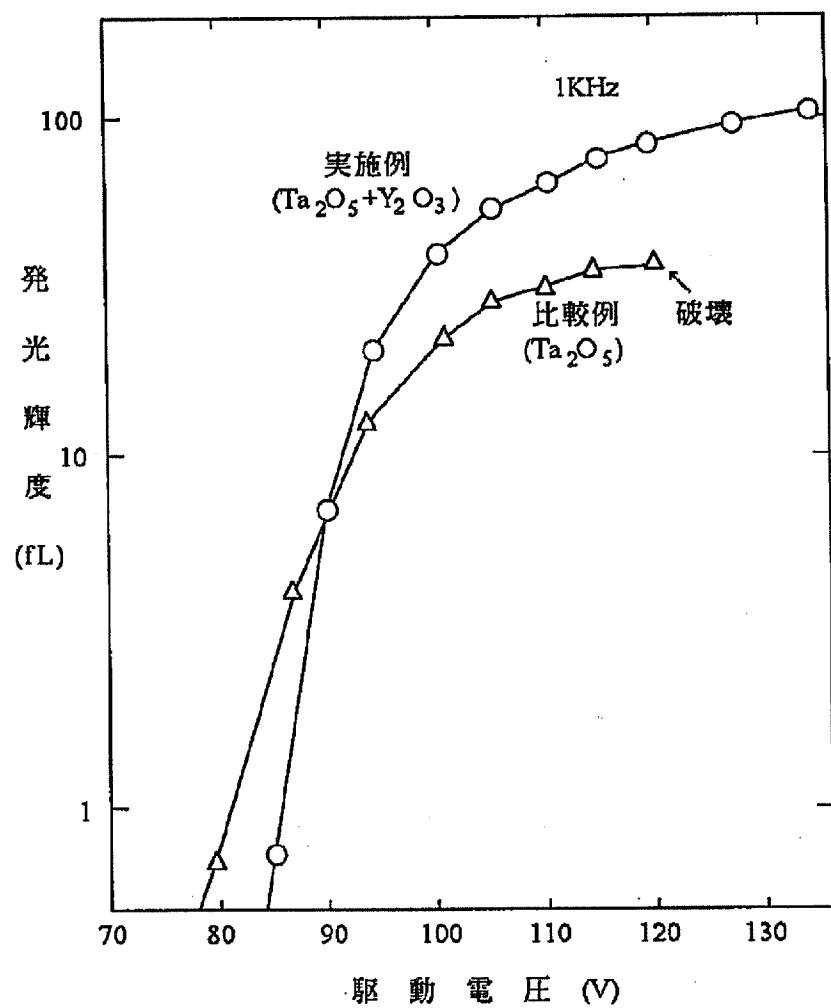
【図6】



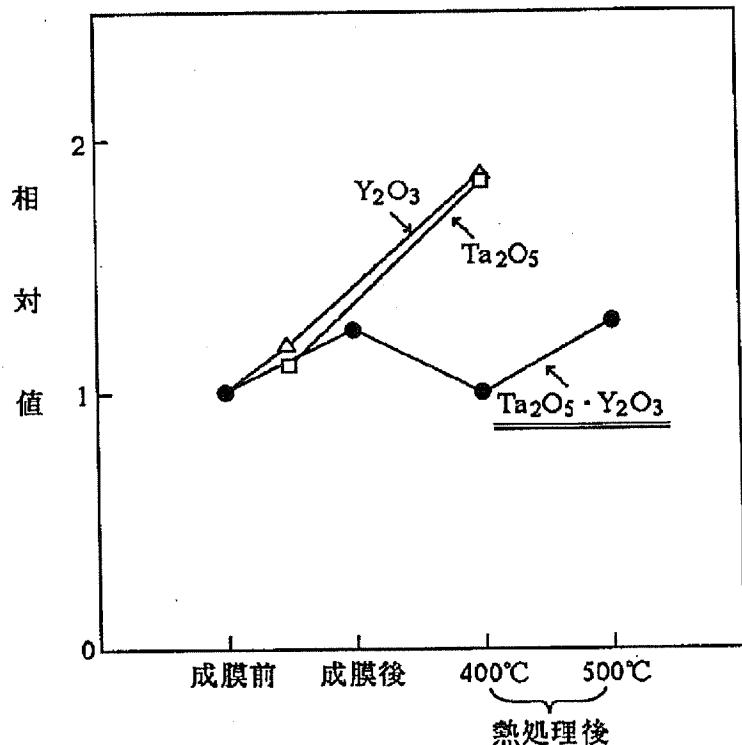
【図7】



【図8】



【図9】



【図10】

### 輝度の経時変化

